

This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problem Mailbox.**



①9 BUNDESREPUBLIK  
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES  
PATENT- UND  
MARKENAMT

①2 Offenlegungsschrift  
①0 DE 100 14 254 A 1

②1 Aktenzeichen: 100 14 254.0  
②2 Anmeldetag: 23. 3. 2000  
②3 Offenlegungstag: 28. 9. 2000

⑤1 Int. Cl. 7:  
C 08 J 3/20  
C 08 J 5/10  
C 09 D 5/00  
B 32 B 5/04  
C 08 L 101/12

③  
DE 100 14 254 A 1

③0 Unionspriorität:  
78187/99 23. 03. 1999 JP

⑦1 Anmelder:  
Kabushiki Kaisha Toyota Chuo Kenkyusho,  
Nagakute, Aichi, JP

⑦4 Vertreter:  
Blumbach, Kramer & Partner GbR, 81245 München

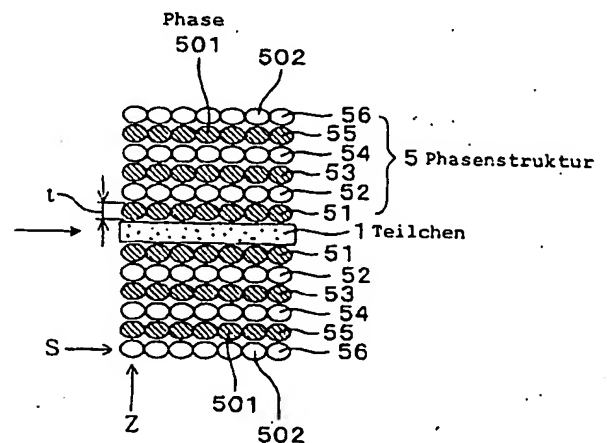
⑦2 Erfinder:  
Hasegawa, Naoki, Aichi, JP; Usuki, Arimitsu, Aichi,  
JP

Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen

Prüfungsantrag gem. § 44 PatG ist gestellt

⑤4 Harzverbundmaterial

⑤7 Es wird ein Harzverbundmaterial bereitgestellt, das die Steuerung einer Polymerphasenstruktur erlaubt. Das Material umfaßt Teilchen 1 mit einer Oberfläche von nicht weniger als 50 m<sup>2</sup>/g und wenigstens zwei oder mehr Polymere 21 und 22 oder ein Copolymer mit wenigstens zwei oder mehr Segmenten. Die Polymere oder das Copolymer bilden/bildet eine Phasenstruktur 5 mit einer Einheitsdicke (t) von 1 bis 1000 nm und sind/ist auf die Oberfläche des Teilchens auflaminiert. Es ist bevorzugt, daß die Teilchen eine nadelförmige, platten- bzw. blattförmige, kugelförmige oder zylindrische Form haben und das Copolymer ein Blockcopolymer oder ein Pfropfcopolymer mit wenigstens zwei oder mehr Segmenten ist.



DE 100 14 254 A 1

Die vorliegende Erfindung betrifft ein Harzverbundmaterial, insbesondere die Struktur eines Harzes.

Bisher wurde anorganisches Material, wie Ton oder Talk, zu einem Harz gegeben, um die Eigenschaften des Harzes zu verbessern.

Beispielsweise offenbaren E. P. Giannelis et al. in Chem. Mater. 5, 1994–1996 (1993) eine Technik zum Komplexieren von Polystyrol und Ton.

Zusätzlich offenbart JP-A 8-333,114 Verfahrensweisen zum Einführen einer polaren Gruppe in ein Polymer, um die Dispergierbarkeit von Ton zu verbessern.

Die Erfinder der vorliegenden Erfindung haben die Techniken zum Verteilen von Ton in einem Polymer ausgenutzt und haben so die Erfindung, die die Steuerung der Phasenstruktur eines Polymers betrifft, vervollständigt.

Die vorliegende Erfindung stellt ein Harzverbundmaterial zur Verfügung, das es erlaubt, die Phasenstruktur eines Polymers zu steuern.

Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist ein Harzverbundmaterial, das Teilchen mit einer Oberfläche von nicht weniger als  $50 \text{ m}^2/\text{g}$  und wenigstens zwei oder mehr Polymere oder ein Copolymer umfaßt, das wenigstens zwei oder mehr Segmente umfaßt, wobei die Polymere oder das Copolymer eine Phasenstruktur bilden/bildet, die auf die Oberfläche der Teilchen laminiert ist und eine Einheitsdicke von  $1 \text{ nm}$  bis  $1.000 \text{ nm}$  aufweist.

Zwei oder mehr Polymere oder ein Copolymer, das zwei oder mehr Segmente (gemeinsame molekulare Kettenbildung) umfaßt, haben ursprünglich die Neigung, daß sich heterogene Polymere oder Segmente trennen und homogene Polymere oder Segmente aggregieren, so daß, wie in Fig. 1A gezeigt, mehrere Phasen 501 und 502 statistisch dispergiert werden. Wenn ein Teilchen in solche Polymere oder ein solches Copolymer mit der statistischen Phasenstruktur 59 eingeführt wird, werden die Phasen 501 und die Phase 502 nacheinander auf die Oberfläche des Teilchens 1 laminiert, wobei eine Phasenstruktur 5 mit den in Fig. 1B gezeigten Orientierungseigenschaften gebildet wird.

Durch Einführen von Teilchen in eine Mischharzmatrix aus zwei oder mehr Polymeren oder aus einem Copolymer, das zwei oder mehr Segmente enthält erlaubt es die vorliegende Erfindung, daß eine Phasenstruktur aus mehreren Schichten gesteuert gebildet wird, die aus den Polymeren oder aus dem Copolymer bestehen.

Obwohl in Fig. 1A und Fig. 1B zwei Arten von Phasen 501 und 502 beispielhaft genannt sind, können drei oder mehr Phasen eingesetzt werden.

In der vorliegenden Erfindung neigen zwei oder mehr Polymere dazu, daß homogene Polymere aggregieren und eine Phasentrennung verursachen. Ein Copolymer, das zwei oder mehr Segmente aufweist, neigt ebenfalls dazu, daß homogene Segmente aggregieren und eine Phasentrennung zwischen heterogenen Segmenten bewirken.

Der in der vorliegenden Beschreibung und den Ansprüchen verwendete Ausdruck "Phasentrennung" bezieht sich auf die Eigenschaften, bei denen homogene Polymere oder homogene Segmente eines Copolymers miteinander aggregieren und sich heterogene Polymere oder heterogene Segmente trennen.

Zwei oder mehr Polymere oder ein Copolymer, die bzw. das eine Phasentrennung bewirken bzw. bewirkt, zeigen die Fähigkeit zur Selbstorganisation um ein Teilchen herum, wobei eine Phasenstruktur gebildet wird, die das Teilchen als Kern hat und Orientierungseigenschaften aufweist.

Diese Phasenstruktur mit Orientierungseigenschaften ist eine Struktur, in der homogene Polymere oder homogene

Segmente in einem Copolymer miteinander aggregieren, wobei Phasen gebildet werden, und die Phasen werden nacheinander um ein Teilchen laminiert.

Wenn ein erfindungsgemäßes Harzverbundmaterial ein Teilchen 1 und zwei Arten von Polymeren 21 und 22 (Fig. 2A) umfaßt, wird von den Polymeren das Polymer 21, das die höhere Affinität zu dem Teilchen 1 hat, zuerst auf der Oberfläche des Teilchens 1 unter Bildung der ersten Phase 51 (Fig. 2B) angeordnet. Danach wird das Polymer 22, das eine geringere Affinität zu dem Teilchen 1 hat, auf der Oberfläche der ersten Phase 51 unter Bildung einer zweiten Phase 52 angeordnet. Danach wird, falls erforderlich, dasselbe Polymer 21 wie das Polymer 21, das die erste Phase 51 gebildet hat, auf der Oberfläche der zweiten Phase 52 unter Bildung einer dritten Phase 53 angeordnet. Dies wird wiederholt, wobei eine Phasenstruktur 5 gebildet wird, in der die Polymere 21 und 22 auf die Oberfläche des Teilchens 1 laminiert sind, wie in Fig. 2B gezeigt ist.

Wenn ein erfindungsgemäßes Harzverbundmaterial ein Teilchen 1 und ein Copolymer 3 umfaßt, das zwei Arten von Segmenten 31 und 32 (Fig. 3A) enthält, wird von den Segmenten das Segment 31 mit der höheren Affinität zu dem Teilchen 1 auf der Oberfläche des Teilchens 1 unter Bildung der ersten Phase 51 (Fig. 3B) angeordnet. Danach werden andere Segmente 32, die angrenzend an die Segmente 31 angeordnet sind, die die erste Phase 51 bildeten, zueinander angeordnet, wobei die zweite Phase 52 gebildet wird.

Dabei werden Phasenstrukturen wiederholt, die jeweils einer Art eines Segments des Copolymers entsprechen. Beispielsweise werden, wie in Fig. 3B gezeigt, im Fall eines Copolymers 3, welches zwei Arten von Segmenten 31 und 32 enthält, zwei Arten von Phasen 501 und 502 wiederholt. Wenn ein Copolymer 3 drei Arten von Segmenten 31, 32 und 33 enthält, wie dies in Fig. 4 gezeigt ist, werden drei Arten von Phasen 501, 502 und 503 wiederholt.

Eine Phasenstruktur, die auf der Oberfläche eines Teilchens gebildet ist, umfaßt in einigen Fällen nur eine Phase und umfaßt in einigen Fällen zwei oder drei oder mehr Phasen. Wie viele Schichten einer Phasenstruktur gebildet werden, kann durch die Anzahl der Polymerarten, die Anzahl der Segmentarten eines Copolymers, die Reihenfolge der Wiederholungen der Segmente und dergleichen gesteuert werden. Dies kann auch durch die Formbedingungen beim Formen eines Harzverbundmaterials im Zustand hoher molekularer Beweglichkeit, wie im geschmolzenen Zustand oder dergleichen, gesteuert werden.

Die Form der Teilchen ist ein Hauptfaktor, der die Orientierung einer Phasenstruktur bestimmt. Die Größe eines Polymers und die Größe eines Segments eines Copolymers sind ein Hauptfaktor, der die Einheitsdicke jeder Phase in einer Phasenstruktur bestimmt.

Deshalb kann die Phasenstruktur durch Auswahl der Form der Teilchen, der Größe des Polymers und der Größe des Segments eines Copolymers und dergleichen gesteuert werden.

Eine vollständigere Würdigung der Erfindung und viele der mit der Erfindung verbundenen Vorteile werden durch die Bezugnahme auf die folgende genaue Beschreibung besser verstanden, wenn sie in Verbindung mit den beigefügten Zeichnungen gelesen wird.

Fig. 1A ist eine Veranschaulichung einer statistischen Phasenstruktur vor dem Komplexieren;

Fig. 1B ist eine Veranschaulichung einer Phasenstruktur in einem erfindungsgemäßen Harzverbundmaterial;

Fig. 2A ist eine Veranschaulichung eines Teilchens und von zwei Arten von Polymeren vor dem Komplexieren;

Fig. 2B ist eine Veranschaulichung einer Phasenstruktur von zwei Arten von Polymeren gemäß der Erfindung;

Fig. 3A ist eine Veranschaulichung eines Teilchens und eines Copolymers, das zwei Arten von Segmenten umfaßt, vor dem Komplexieren;

Fig. 3B ist eine Veranschaulichung einer Phasenstruktur eines erfindungsgemäßen Copolymers, das zwei Arten von Segmenten umfaßt;

Fig. 4 ist eine Veranschaulichung einer Phasenstruktur eines erfindungsgemäßen Copolymers, das drei Arten von Segmenten umfaßt;

Fig. 5A ist eine Veranschaulichung eines plättchenförmigen Teilchens in der vorliegenden Erfindung;

Fig. 5B ist eine Veranschaulichung eines zylindrischen Teilchens in der vorliegenden Erfindung;

Fig. 6A ist eine Veranschaulichung eines nadelförmigen Teilchens in der vorliegenden Erfindung;

Fig. 6B ist eine Veranschaulichung eines kugelförmigen Teilchens in der vorliegenden Erfindung;

Fig. 7 ist eine Veranschaulichung einer Phasenstruktur eines Harzverbundmaterials gemäß der vorliegenden Erfindung;

Fig. 8 ist eine (anstelle einer Zeichnung eingereichte) Photographie einer transmissionselektronenmikroskopischen Aufnahme (Vergrößerung: 150.000), welche die Struktur des Harzverbundmaterials des Beispiels 1 zeigt;

Fig. 9 ist eine (anstelle einer Zeichnung eingereichte) Photographie einer transmissionselektronenmikroskopischen Aufnahme (Vergrößerung: 150.000), welche die Struktur des Harzmaterials des Vergleichsbeispiels 1 zeigt.

Im Rahmen der vorliegenden Erfindung wird eine Phasenstruktur um ein Teilchen gebildet, wenn die Oberfläche des Teilchens  $50 \text{ m}^2/\text{g}$  oder mehr beträgt. Wenn die Oberfläche weniger als  $50 \text{ m}^2/\text{g}$  ist, ist die Grenzfläche zwischen dem Teilchen und den Polymeren oder dem Copolymer gering, so daß die Phasenstruktur nicht gut gesteuert werden kann.

Vorzugsweise ist die Oberfläche des Teilchens  $100 \text{ m}^2/\text{g}$  oder mehr, stärker bevorzugt  $200 \text{ m}^2/\text{g}$  oder mehr. Wenn die Oberfläche vorzugsweise innerhalb dieser Bereiche liegt, kann die Phasenstruktur besonders gut gesteuert werden.

Die Oberfläche eines Teilchens bezieht sich auf den Wert der Oberfläche des Teilchens, geteilt durch das Gewicht des Teilchens.

Wie in Fig. 1A bis Fig. 4 gezeigt, bilden Polymere oder bildet ein Copolymer eine Phasenstruktur 5 mit einer Einheitsdicke ( $t$ ) von 1 nm bis 1000 nm, stärker bevorzugt von 3 nm bis 1000 nm, um ein Teilchen 1. Der in der Beschreibung und in den Ansprüchen verwendete Begriff "Einheitsdicke ( $t$ )" bezieht sich auf die Dicke einer Phase, die dadurch gebildet wird, daß homogene Polymere oder Segmente in einem Copolymer miteinander aggregieren.

Wenn die Einheitsdicke ( $t$ ) geringer als 1 nm ist, kann deswegen, weil die Wechselwirkung zwischen Polymeren oder Segmenten gering ist, die Eigenschaft als Polymer oder Segment, nämlich die Phasentrennung, nicht zufriedenstellend erhalten werden. Wenn ( $t$ ) 3 nm oder mehr ist, zeigen sich deswegen, weil die Wechselwirkung zwischen Polymeren oder Segmenten stärker wird, die Eigenschaften als Polymer oder Segment gut. Andererseits wird dann, wenn ( $t$ ) 1.000 nm übersteigt, die Bildung einer Phasenstruktur um die Teilchen schwierig.

Vorzugsweise ist die Einheitsdicke ( $t$ ) einer Phasenstruktur 5 nm bis 1.000 nm, stärker bevorzugt 5 bis 500 nm. Dadurch wird die Steuerung der Phasenstruktur einfacher, und es wird eine Phasenstruktur mit Orientierungseigenschaften gebildet.

Die Einheitsdicke ( $t$ ) einer Phasenstruktur hängt von einer Kombination von zwei oder mehr Polymeren oder zwei oder mehr Segmenten in einem Copolymer, ihrem Molekularge-

wicht, ihrer molekularen Beweglichkeit und dergleichen ab.

In der vorliegenden Erfindung ist es nicht erforderlich, daß die Phasenstruktur im Bereich des gesamten Harzverbundmaterials gebildet wird; die Phasenstruktur kann jedoch in mindestens einem Teil des Materials gebildet sein.

Es ist wünschenswert, daß die Phasenstruktur in den Polymeren oder in dem Copolymer in einer Menge von 25 bis 100 Gew.-% enthalten ist. In diesem Bereich wird die Funktion der Phasenstruktur einfach ausgeübt. Wie vorstehend gezeigt, weisen die Polymere oder weist das Copolymer gemäß der vorliegenden Erfindung einen Teil auf, in dem die Anordnung von Harzmolekülen durch das Teilchen gesteuert wird.

Es ist bevorzugt, daß das Teilchen eine nadelförmige, platten- bzw. blattförmige, kugelförmige oder zylindrische Form hat. Dadurch kann die Phasenstruktur besonders gut gesteuert werden. Beispielsweise wird, wie in Fig. 5A gezeigt ist, im Fall platten- bzw. blattförmiger Teilchen 1 eine Phasenstruktur 5 gebildet, in der mehrere Phasen (wie beispielsweise die erste bis fünfte Phase 51 bis 55) auf deren oberen und unteren Flächen auflaminiert sind. Wie in Fig. 5B gezeigt ist, wird im Fall zylindrischer Teilchen 1, die einen Hohlraum 10 aufweisen, eine Phasenstruktur 5 gebildet, in der mehrere Phasen auf deren Innen- und Außenflächen auflaminiert sind.

Im Fall nadelförmiger Teilchen 1 (Fig. 6A) und kugelförmiger Teilchen 1 (Fig. 6B) wird eine Phasenstruktur 5, in der mehrere Phasen auf deren Oberflächen auflaminiert sind, gebildet.

Die Form des Teilchens ist nicht auf diese Formen beschränkt, sondern kann eine andere räumliche, hohle oder ebene Form oder nicht definierte Form haben. Selbst im Fall einer beliebigen Form werden verschiedene Phasenstrukturen um ein Teilchen gebildet.

Das Material für das Teilchen kann ein beliebiges sein. Beispielsweise kann das Teilchen aus anorganischem oder organischem Material bestehen. Anorganische Materialien sind Metall, Keramik, Ton, Kohlenstoffverbindungen und dergleichen.

Als Metall können typische Metalle wie Aluminium, Silicium, Calcium und Kalium und Übergangsmetalle wie Eisen, Cobalt, Kupfer und Gold genannt werden. Das Metall kann auch eine Legierung von Metallen sein.

Als Keramikmaterial können beispielsweise sogenannte Siliciumverbindungen, Metalloxide, Metallsulfide und Metallnitride genannt werden, die Elemente wie Silicium, Sauerstoff, Schwefel und Stickstoff enthalten.

Die Oberflächen dieser Metalle und Keramikmaterialien können mit einer organischen Verbindung behandelt werden, um die Affinität zu den Polymeren oder zu dem Copolymer zu verbessern.

Ton hat gegebenenfalls ein austauschbares Ion.

Beispiele von Ton mit einem austauschbaren Ion sind nicht auf die folgenden Tone beschränkt, umfassen jedoch die Kaolinitgruppe wie Kaolinit, Halloysit und dergleichen; die Smektitgruppe wie Montmorillonit, Videlit, Saponit, Hektorit, Glimmer und dergleichen; und die Vermikulitgruppe. Ton kann natürlicher Ton, durch Behandlung von natürlichem Ton erhaltener Ton oder synthetischer Ton sein, wie quellbarer fluorierter Glimmer.

Es ist bevorzugt, daß der Ton mit einem austauschbaren Ion organisch gemachter Ton mit einer organischen Substanz ist, die an der Oberfläche des Materials adsorbiert und/oder daran gebunden ist und der dadurch erhalten wird, daß man den Ton mit einer organischen Substanz behandelt. Insbesondere ist es bevorzugt, daß organische Oniumionen an die Oberfläche des Tons gebunden werden, weil dadurch die Phasenstruktur leichter gesteuert werden kann.

Es ist bevorzugt, daß Ton mit einem Gehalt an austauschbaren Ionen von 50 bis 200 meq/100 g eingesetzt wird. Wenn der Gehalt geringer als 50 meq/100 g ist, kann möglicherweise der Austausch eines Kations des Tons durch ein organisches Oniumion nicht zufriedenstellend durchgeführt werden. Wenn der Gehalt an austauschbaren Ionen 200 meq/100 g übersteigt, wird die Bindungskraft zwischen Tonschichten stärker, und das Quellen zwischen den Tonschichten kann schwierig werden.

Beispiele von organischen Oniumionen schließen ein: das Hexylammoniumion, Octylammoniumion, Decylammoniumion, Dodecylammoniumion, Tetracyclammoniumion, Hexacyclammoniumion, Octacyclammoniumion, Hexyltrimethylammoniumion, Octyltrimethylammoniumion, Decyltrimethylammoniumion, Dodecyltrimethylammoniumion, Tetracycltrimethylammoniumion, Hexacycltrimethylammoniumion, Octacycltrimethylammoniumion, Dodecyltrimethylammoniumion, Dodecylmethylammoniumion und dergleichen.

Weitere Beispiele umfassen schichtähnliche Polysilicatesalze wie Kaneamit, Magadit, Ailamit, Kenyit, Makatit und dergleichen.

Beispiele von Ton ohne austauschbare Ionen umfassen Allophan mit kugelförmiger Struktur, Imogilit mit zylindrischer Struktur, Cepiolit und dergleichen. Alternativ dazu kann deren Oberfläche mit einer organischen Substanz behandelt werden, um die Affinität zu den Polymeren oder zu dem Copolymer zu erhöhen.

Beispiele von Kohlenstoffverbindungen schließen Aktivkohle, Graphit, Flaren, Kohlenstoffnanoröhrchen, Kohlenstoffasern und dergleichen ein.

Beispiele von organischen Substanzen schließen Latex, vernetzte Polymere und dergleichen ein. Eine organische Substanz kann ein niedermolekularer organischer Kristall sein.

Zwei oder mehr Polymere oder ein Copolymer mit zwei oder mehr Segmenten neigen dazu, daß homogene Polymere oder homogene Segmente miteinander aggregieren, so daß eine Phasentrennung bewirkt wird. Solche Phasentrennungseigenschaften werden erzeugt durch einen Unterschied in der Aggregationskraft zwischen Polymeren oder Segmenten, einem Unterschied in der elektrischen Wechselwirkung, einem Unterschied in der Trennungsrates aufgrund einer Kristallisation und dergleichen und einem Unterschied in der Affinität zu den Teilchen.

Zwei oder mehr Polymere können aus den folgenden Polymeren kombiniert werden: Polyamid, Polyurethan, Polyharnstoff, Polycarbonat, Polyacetal, Polyester, Polyarylat, Polyphenylenether, Polyphenylsulfid, Polyethylen, Polypropylen, Polybuten, Polypenten, Ethylen-Propylen-Copolymer, Ethylen-Buten-Copolymer, Polybutadien, Polyisopren, hydriertes Polybutadien, hydriertes Polyisopren, Ethylen-Propylen-Dien-Copolymer, Ethylen-Buten-Dien-Copolymer, Butylkautschuk, Polystyrol, Styrol-Butadien-Copolymer, Styrol-hydriertes Butadien-Copolymer, Polyether, Polysulfon, Polyketon, Polyphthalimid, Polyetherimid, Polybenzimidazol, Polyimid, Polycarbodiimid, fluoriertes Polymer wie polytetrafluoriertes Ethylen und dergleichen, Polyamidimid, Polyetherimid, Flüssigkristallpolymer, Polysilan, Siliconpolymer wie Polysiloxan und dergleichen, und Acrylpolymer wie PMMA (Polymethylmethacrylat). Letzteres wird auch weiter mit "PMMA" abgekürzt.

Bevorzugte Beispiele von Kombinationen von zwei oder mehr Polymeren umfassen Polyphenylenoxid und Polystyrol, Polypropylen und Ethylen-Propylen-Kautschuk, Polypropylen und Polybuten, Polypropylen und Styrol-Butadien-Kautschuk, und Polypropylen und hydrierter Styrol-Butadien-Kautschuk.

Als Copolymer mit zwei oder mehr Segmenten gibt es beispielsweise ein Copolymer, das durch Polymerisation der folgenden zwei oder von mehreren Segmenten(n) erhalten wird. Beispiele solcher Segmente umfassen: Polyamid, Polyurethan, Polyharnstoff, Polycarbonat, Polyacetal, Polyester, Polyarylat, Polyphenylenether, Polyphenylsulfid, Polyethylen, Polypropylen, Polybuten, Polypenten, Ethylen-Propylen-Copolymer, Ethylen-Buten-Copolymer, Polybutadien, Polyisopren, hydriertes Polybutadien, hydriertes Polyisopren, Ethylen-Propylen-Dien-Copolymer, Ethylen-Buten-Dien-Copolymer, Butylkautschuk, Polystyrol, Styrol-Butadien-Copolymer, Styrol-hydriertes Butadien-Copolymer, Polyether, Polysulfon, Polyketon, Polyphthalimid, Polyetherimid, Polybenzimidazol, Polyimid, Polycarbodiimid, fluoriertes Polymer wie polytetrafluoriertes Ethylen und dergleichen, Polyamidimid, Polyetherimid, Flüssigkristallpolymer, Polysilan, Siliconpolymer wie Polysiloxan und dergleichen, und Acrylpolymer wie PMMA.

Spezielle Beispiele umfassen Polystyrol, Polyamid, Polyurethan, Polyester, Polybutadien, hydriertes Polybutadien, Polyisopren, hydriertes Polyisopren und Polyether.

Als Struktur eines Copolymers mit zwei oder mehr Segmenten können Blockcopolymere oder Pfropfcopolymere genannt werden.

Beispiele von im Handel erhältlichen Copolymeren, die zwei oder mehr Segmente aufweisen, umfassen Tuflex (Firma Asahi Chemical), Hytrel (Firma Toray; Firma Dupont), Pelprene (Firma Toyobo), Grilux (Firma JSR), Pebax (Firma Toray), Daiamid (Firma Daisel, Huls) und Elastolan (Firma Takeda Bardishurethane Kogyo).

Es ist bevorzugt, daß das Zahlenmittel des Molekulargewichts der zwei oder mehr Polymeren und des Copolymers mit zwei oder mehr Segmenten 5.000 bis 10.000.000 ist. Wenn es geringer als 5.000 ist, besteht die Möglichkeit, daß die Verarbeitbarkeitseigenschaften des Harzverbundmaterials verschlechtert werden. Wenn es 10.000.000 übersteigt, besteht die Möglichkeit, daß die mechanischen Eigenschaften des Harzverbundmaterials verschlechtert werden. Es ist stärker bevorzugt, daß das Molekulargewicht 5.000 bis 1.000.000 und insbesondere 10.000 bis 500.000 ist. Dadurch werden die Verarbeitbarkeitseigenschaften und die mechanischen Eigenschaften verbessert.

Es ist bevorzugt, daß der Teilchengehalt 0,1 bis 200 Gew.-Teile ist, bezogen auf 100 Gew.-Teile der Polymere oder des Copolymers. Wenn er geringer als 0,1 Gew.-Teile ist oder 200 Gew.-Teile übersteigt, wird die Steuerung der Phasenstruktur möglicherweise schwierig. Es ist bevorzugt, daß der Teilchengehalt 0,1 bis 30 Gew.-Teile ist, bezogen auf 100 Gew.-Teile der Polymere oder des Copolymers. Dadurch werden die Wirkungen weiter verbessert, so daß die Struktur des gesamten Harzverbundmaterials geregelt gesteuert wird und ein Material mit ausgewogenen Eigenschaften als Polymer oder als Segment erhalten wird.

Um die Phasenstruktur mit einer geringeren Menge an Teilchen zu steuern, ist es bevorzugt, daß die Teilchen in den Polymeren oder in dem Copolymer fein verteilt werden.

Wenn das Teilchen Schichtenton ist, ist es bevorzugt, um den geschichteten Ton fein zu dispergieren, daß die Polymere oder das Copolymer zwischen Tonschichten eingelagert bzw. interkaliert wird. Der Ausdruck "interkaliert" bezieht sich auf den Zustand, bei dem der Abstand zwischen Schichten eines Schichtentons weiter wird als der Ursprungsabstand zwischen Schichten des Schichtentons vor dem Komplexieren der Polymere oder des Copolymers mit Schichtenton. Ob Interkalation vorliegt oder nicht, kann durch Röntgenbeugungsanalyse bestimmt werden. Durch Interkalation wird die Grenzfläche zwischen der Oberfläche des Schichtentons und der Polymere oder des Copolymers

vergrößert und wird die Bildung einer Phasenstruktur vereinfacht.

Stärker bevorzugt wird der Abstand zwischen den Schichten nach dem Komplexieren im Vergleich zum Abstand zwischen Schichten vor dem Komplexieren um 1 nm (10 Å) oder mehr aufgeweitet. Noch stärker bevorzugt wird der Abstand zwischen den Schichten durch das Komplexieren um 2 nm (20 Å) oder mehr aufgeweitet, verglichen mit dem Abstand vor dem Komplexieren. Noch weiter bevorzugt wird der Abstand zwischen den Schichten durch das Komplexieren um 10 nm (100 Å) oder mehr aufgeweitet, verglichen mit dem Abstand vor dem Komplexieren. Besonders bevorzugt geht die Schichtstruktur des Schichtentons verloren, was zu einer molekularen Dispersion in einer Monoschicht führt.

Bei der Herstellung eines erfindungsgemäßen Harzverbundmaterials ist es bevorzugt, daß Teilchen mit jeweils einer Oberfläche von 50 m<sup>2</sup>/g oder mehr und wenigstens zwei oder mehr Polymere oder ein Copolymer mit wenigstens zwei oder mehr Segmenten in der Schmelze gemischt werden. Das resultierende Verbundmaterial wird unter Orientieren der Teilchen spritzgegossen oder expandiert. Dadurch werden die Teilchen des Harzverbundmaterials orientiert, und somit kann die gesamte Struktur des Harzverbundmaterials gesteuert werden. Mit anderen Worten: Die Teilchen 1 in dem Harzverbundmaterial werden – wie in Fig. 7 gezeigt – in eine bestimmte Richtung orientiert, und die Phasenstrukturen 5, die auf ihren Oberflächen gebildet werden, werden ebenfalls in dieselbe Richtung orientiert. Dadurch kann eine neue Funktion verliehen werden, und die mechanischen Eigenschaften können verbessert werden.

Das erfindungsgemäße Harzverbundmaterial kann als vibrationsdämpfendes oder als gegen Vibration isolierendes Material, als elektrisch leitendes Material, als Folienmaterial, als optisches Material und als antimagnetisches Material eingesetzt werden.

Bei Verwendung des Harzverbundmaterials als vibrationsdämpfendes oder gegen Vibration isolierendes Material ist insbesondere eines der Polymere beispielsweise ein weiches Polymer, und das andere ist ein hartes Polymer, oder es ist eines der zwei Segmente des Copolymers, das zwei Segmente umfaßt, ein weiches Segment, und das andere ist ein hartes Segment. In diesem Fall werden, wenn diese Polymere oder ein solches Copolymer mit einem Teilchen vermischt werden/wird, eine weiche Phase und eine harte Phase in einer Richtung entlang der Oberfläche des Teilchens (Richtung des Pfeils S in Fig. 1B) alternierend gebildet, wie in Fig. 1B gezeigt ist. Wenn ein solches Harzverbundmaterial in einem Vibrationsfeld angeordnet wird, absorbiert die weiche Phase die Vibration und das Material zeigt Vibrationsdämpfungs- und Vibrationsisolationseigenschaften.

Bei Verwendung des Harzverbundmaterials als elektrisch leitendes Material ist beispielsweise eines der mindestens zwei Polymere ein elektrisch leitendes Polymer und das/die andere(n) ist/sind ein elektrisch nichtleitendes Polymer, oder ist eines der mindestens zwei Segmente des Copolymers, das mindestens zwei Segmente enthält, ein elektrisch leitendes Segment und das/die andere(n) ist/sind ein elektrisch nichtleitendes Segment. In diesem Fall werden dann, wenn diese Polymere oder dieses Copolymer mit einem Teilchen vermischt werden, eine elektrisch leitende Phase und eine elektrisch nicht leitende Phase in einer Richtung entlang der Oberfläche der Teilchen (Richtung des Pfeils S in Fig. 1B) alternierend gebildet. Ein solches Harzverbundmaterial hat aufgrund des elektrischen Flusses in der Richtung entlang der Oberfläche der Teilchen elektrisch leitende Eigenschaften; es hat jedoch aufgrund des Fehlens eines elektrischen Flusses in der Richtung senkrecht zu den Teil-

chen elektrisch isolierende Eigenschaften. Mit anderen Worten: Ein solches Harzverbundmaterial funktioniert als elektrisch leitendes anisotropes Material.

Polymere oder ein Copolymer mit Phasentrennungseigenschaften werden/wird zwischen eine Metallphase und eine Metallphase, zwischen eine Halbleiterphase und eine Metallphase oder zwischen eine Halbleiterphase und eine Halbleiterphase eingeführt. Somit kann die Phasenstruktur der Polymere oder des Copolymers auf deren Oberfläche gesteuert werden.

Bei Verwendung des Harzverbundmaterials als Folienmaterial ist beispielsweise eines der mindestens zwei Polymere ein Polymer mit Gasbarriereigenschaften oder Gassperreigenschaften, und das/die andere(n) ist/sind ein Polymer in Form einer Matrix, oder eines der Segmente eines Copolymers, das mindestens zwei Segmente enthält, ist ein Segment mit Gasbarriereigenschaften oder Gassperreigenschaften und das/die andere(n) ist/sind ein Segment in Form einer Matrix. In diesem Fall kann eine Funktion dahingehend verliehen werden, daß Gas in der Richtung entlang der Oberfläche der Teilchen (S-Richtung in Fig. 1B) durchtreten kann, jedoch Gas in vertikaler Richtung (Z-Richtung in Fig. 1B) blockiert wird. Da die Phasenstruktur im Nanometerbereich gesteuert werden kann, kann ein solches Material als Substrat für mehrschichtige Folien eingesetzt werden.

Bei der Verwendung des Harzverbundmaterials als optisches Material wird beispielsweise eine Phasenstruktur auf der Oberfläche eines Teilchens mit mindestens zwei Polymeren oder mit einem Copolymer, das mindestens zwei Segmente enthält, gebildet, wobei jedes der Polymere bzw. Segmente einen unterschiedlichen Brechungsindex hat. In diesem Fall kann deswegen, weil Licht (elektromagnetische Welle) aufgrund der Orientierungseigenschaften der Phasenstruktur beeinflusst wird, das Material als doppelbrechende Membran eingesetzt werden.

Wenn ein Harzverbundmaterial mit einer Phasenstruktur, die durch Teilchen gesteuert wird, zu einem Polymer ohne gesteuerte Phasenstruktur gegeben wird, kann des weiteren ein neues Verbundmaterial hergestellt werden.

Polymere ohne gesteuerte Struktur (Phasenstruktur) sind Polymere wie Polyamid, Polyester, Polyphenylenoxid, Polyacetal, Polyphenylsulfid, Polycarbonat, Epoxyharz, Phenolharz, Polypropylen, Polyethylen, Ethylen-Propylen-Copolymer, Polystyrol und dergleichen. Insbesondere weist ein Verbundmaterial gemäß der vorliegenden Erfindung, das ein Blockcopolymer mit einem Elastomersystem umfaßt, eine verbesserte Schlagfestigkeit auf. In diesem Fall ist die Menge des Verbundmaterials vorzugsweise 1 Gew.-Teil bis 100 Gew.-Teile und stärker bevorzugt 3 Gew.-Teile bis 50 Gew.-Teile und noch stärker bevorzugt 5 Gew.-Teile bis 30 Gew.-Teile, bezogen auf 100 Gew.-Teile des Polymers ohne Phasenstruktur. Besonders bevorzugt sind als Blockcopolymer ein Blockcopolymer mit einem Styrolsystem, das Styrol-Butadien oder Styrol-hydriertes Butadien als Monomerbausteine enthält, und ein Blockcopolymer mit einem Amidsystem. Als zuzugebende Teilchen werden vorzugsweise Ton, insbesondere ein mit einer organischen Substanz, wie einem Oniumsalz oder dergleichen, behandelter Ton, eingesetzt.

Das erfindungsgemäße Harzverbundmaterial kann durch Spritzgießen, Strangpressen, Preßformen und Blasformen zu einem geformten Produkt verarbeitet werden.

#### Ausführungsformen

Beispiele 1 bis 5, die Aspekte der vorliegenden Erfindung betreffen, und Vergleichsbeispiele 1 bis 3 werden im folgenden erläutert.

## Beispiel 1

Das Harzverbundmaterial gemäß diesem Beispiel umfaßte ein Copolymer und ein Teilchen. Tuftec H1013 (hergestellt von der Firma Asahi Chemical) wurde als Copolymer eingesetzt. Als Teilchen wurde organisch gemachter Montmorillonit eingesetzt. Der organisch gemachte Montmorillonit war plättchenförmiger Ton mit einer Größe von 100 nm × 1 nm und einer Oberfläche von 800 m<sup>2</sup>/g.

Bei der Herstellung des organisch gemachten Montmorillonits wurde zuerst Natrium-Montmorillonit (Markenname: Knipia F), hergestellt von der Firma Knimine Kogyo, als Schichtenton hergestellt. 80 g Natrium-Montmorillonit wurden bei 80°C in 5.000 ml Wasser dispergiert. 28,5 g Octadecylamin und 11 ml konzentrierte Chlorwasserstoffsäure wurden bei 80°C in 2.000 ml Wasser gelöst, und die Lösung wurde zu der Dispersion von Montmorillonit gegeben. Der Niederschlag wurde abfiltriert, mit Wasser bei 80°C dreimal gewaschen und lyophilisiert, wobei mit Octadecylammonium-Ionen organisch gemachter Montmorillonit erhalten wurde.

Dann wurde der organisch gemachte Montmorillonit (38,4 g) zu Tuftec H1013 (400 g) gegeben und unter Vermischen mit einem Zweischnellenextruder geschmolzen. Die Vermischungstemperatur war 200°C, die Achsenrotationsgeschwindigkeit war 200 Upm, und der Gehalt an anorganischen Stoffen war 5 Gew.-%, gemessen mit einem Verfahren, bei dem die nach Glühen verbleibenden Stoffe bestimmt werden.

So wurde das Harzverbundmaterial dieses Beispiels erhalten.

Bei Untersuchung des resultierenden Harzverbundmaterials mit einem Transmissionselektronenmikroskop wurde eine Schichtenphasenstruktur mit einer Einheitsdicke von etwa 10 nm beobachtet, worin die Struktur des Copolymers (Tuftec) um die dispergierte Montmorillonitschicht (schwarzer Teil in Querrichtung länger) gesteuert wurde und mehrere Phasen (Segment, schwarzes und weißes Muster in Querrichtung) auf die Oberfläche der Schicht, wie in Fig. 8 gezeigt, auflaminiert waren. In Fig. 8 gibt es einen in Längsrichtung gestreiften unklaren Teil, der jedoch durch Behandlung zur Umwandlung in elektronische Daten erzeugt wurde, und somit besteht keine Beziehung zu der Phasenstruktur.

## Beispiel 2

Als Teilchen wurde organisch gemachtes Allophan eingesetzt. Das organisch gemachte Allophan war ein kugelförmiger Ton mit einem Durchmesser von 5 nm und einer Oberfläche von 770 m<sup>2</sup>/g. Bei Behandlung des Allophans mit einer organischen Substanz wurden 30 g Hexyltriethoxysilan zu 100 g Allophan gegeben, das in 1.000 g Wasser dispergiert war; dann wurden 10 ml verdünnte Chlorwasserstoffsäure dazugegeben, und es wurde 2 Stunden bei 80°C gerührt. Danach wurde filtriert und getrocknet.

Wie in Beispiel 1 wurde als Copolymer Tuftec H1013 eingesetzt.

Dann wurde das organisch gemachte Allophan (30 g) zu Tuftec H1013 (400 g) gegeben und unter Vermischen mit einem Zweischnellenextruder geschmolzen. Die Vermischungstemperatur war 200°C, die Achsenrotationsgeschwindigkeit war 200 Upm, und der Gehalt an anorganischen Stoffen war 7 Gew.-%, gemessen mit einem Verfahren, bei dem die nach Glühen verbleibenden Stoffe bestimmt werden.

So wurde das Harzverbundmaterial dieses Beispiels erhalten.

Bei Untersuchung des resultierenden Harzverbundmaterials mit einem Transmissionselektronenmikroskop wurde eine kugelförmige Phasenstruktur mit einer Einheitsdicke von etwa 10 nm beobachtet, worin die Struktur des Copolymers (Tuftec) um das dispergierte kugelförmige Allophan gesteuert wurde und mehrere Phasen (Segment) auflaminiert waren.

## Beispiel 3

Als Teilchen wurde organisch gemachtes Imogolit eingesetzt. Das organisch gemachte Imogolit war ein zylinderförmiger Ton mit einem Durchmesser von 3 nm und einer Oberfläche von 740 m<sup>2</sup>/g. Bei der Behandlung von Imogolit mit einer organischen Substanz wurden 30 g Hydroxypropyltriethoxysilan zu 100 g Imogolit gegeben, das in 1.000 g Wasser dispergiert war; dann wurden 10 ml verdünnte Chlorwasserstoffsäure dazugegeben, und es wurde 2 Stunden bei 80°C gerührt. Danach wurde filtriert und getrocknet.

Als Copolymer wurde Tuftec H1013 wie in Beispiel 1 eingesetzt.

Dann wurde das organisch gemachte Imogolit (30 g) zu Tuftec H1013 (400 g) gegeben und unter Vermischen mit einem Zweischnellenextruder geschmolzen. Die Vermischungstemperatur war 200°C, die Achsenrotationsgeschwindigkeit war 200 Upm, und der Gehalt an anorganischen Stoffen war 7 Gew.-%, gemessen mit einem Verfahren, bei dem die nach Glühen verbleibenden Stoffe bestimmt werden.

So wurde das Harzverbundmaterial dieses Beispiels erhalten.

Bei Untersuchung des resultierenden Harzverbundmaterials mit einem Transmissionselektronenmikroskop wurde eine zylinderförmige (nadelförmige) Phasenstruktur mit einer Einheitsdicke von etwa 10 nm beobachtet, worin die Struktur des Copolymers (Tuftec) um das dispergierte zylinderförmige (nadelförmige) Imogolit gesteuert wurde und mehrere Phasen (Segment) auflaminiert waren.

## Beispiel 4

Als Teilchen wurde derselbe Montmorillonit wie in Beispiel 1 eingesetzt (Oberfläche 800 m<sup>2</sup>/g).

Als Copolymer wurde Daiamide (Firma Disel, Hules) eingesetzt.

Der organisch gemachte Montmorillonit (38,4 g) wurde zu Daiamide (400 g) gegeben und unter Vermischen mit einem Zweischnellenextruder geschmolzen. Die Vermischungstemperatur war 250°C, die Achsenrotationsgeschwindigkeit war 200 Upm, und der Gehalt an anorganischen Stoffen war 5 Gew.-%, gemessen mit einem Verfahren, bei dem die nach Glühen verbleibenden Stoffe bestimmt werden.

So wurde das Harzverbundmaterial dieses Beispiels erhalten.

Bei Untersuchung des resultierenden Harzverbundmaterials mit einem Transmissionselektronenmikroskop wurde eine Schichtphasenstruktur mit einer Einheitsdicke von etwa 5 bis 10 nm beobachtet, worin die Struktur des Copolymers (Daiamide) um den dispergierten Schichtenmontmorillonit gesteuert wurde und mehrere Phasen auflaminiert waren.

## Beispiel 5

Als Teilchen wurde derselbe Montmorillonit wie in Beispiel 1 eingesetzt (Oberfläche 800 m<sup>2</sup>/g).

Als Copolymer wurde Estran C95A (Firma Takeda Verdishurethane Kogyo) eingesetzt.



Der organisch gemachte Montmorillonit (38,4 g) wurde zu Estran C95A (400 g) gegeben und unter Vermischen mit einem Zweischnellenextruder geschmolzen. Die Vermischungstemperatur war 220°C, die Achsenrotationsgeschwindigkeit war 200 Upm, und der Gehalt an anorganischen Stoffen war 5 Gew.-%, gemessen mit einem Verfahren, bei dem die nach Glühen verbleibenden Stoffe bestimmt werden.

So wurde das Harzverbundmaterial dieses Beispiels erhalten.

Bei Untersuchung des erhaltenen Harzverbundmaterials mit einem Transmissionselektronenmikroskop wurde eine Schichtenphasenstruktur mit einer Einheitsdicke von etwa 5 bis 10 nm beobachtet, worin die Struktur des Copolymers (Estran) um den dispergierten Schichtenmontmorillonit gesteuert wurde und mehrere Phasen auflaminiert waren.

#### Beispiel 6

60 g des in Beispiel 1 erhaltenen Verbundmaterials und 140 g Polypropylen (PP) wurden unter Vermischen mit einem Zweischnellenextruder geschmolzen. Die Vermischungstemperatur war 200°C und die Achsenrotationsgeschwindigkeit war 200 Upm.

Bei Untersuchung des resultierenden Harzverbundmaterials mit einem Elektronenmikroskop wurde ein Styrol-Butadien-Copolymer in Polypropylen (PP) im Submikronbereich dispergiert gefunden. Eine Schichtenphasenstruktur mit einer Einheitsdicke von etwa 10 nm in einer Styrol-Butadien-Copolymer-Phase wurde beobachtet, worin die Struktur des Copolymers um den dispergierten Montmorillonit gesteuert wurde und mehrere Phasen auflaminiert waren.

#### Beispiel 7

60 g des in Beispiel 1 erhaltenen Verbundmaterials und 140 g einer Legierung aus Polyphenylenoxid/Polystyrol wurden unter Vermischen mit einem Zweischnellenextruder geschmolzen. Die Vermischungstemperatur war 300°C und die Achsenrotationsgeschwindigkeit war 200 Upm.

Bei Untersuchung des resultierenden Harzverbundmaterials mit einem Elektronenmikroskop wurde ein Styrol-Butadien-Copolymer in einer Legierung aus Polyphenylenoxid/Polystyrol im Submikronbereich dispergiert gefunden. Eine Schichtenphasenstruktur mit einer Einheitsdicke von etwa 10 nm in einer Styrol-Butadien-Copolymer-Phase wurde beobachtet, worin die Struktur des Copolymers um den dispergierten Montmorillonit gesteuert wurde und mehrere Phasen auflaminiert waren.

#### Beispiel 8

60 g des in Beispiel 4 erhaltenen Verbundmaterials und 140 g Nylon-6 wurden unter Vermischen mit einem Zweischnellenextruder geschmolzen. Die Vermischungstemperatur war 250°C und die Achsenrotationsgeschwindigkeit war 200 Upm.

Bei Untersuchung des resultierenden Harzverbundmaterials mit einem Elektronenmikroskop wurde ein Amidsystem-Copolymer in Nylon-6 im Submikronbereich dispergiert gefunden. Eine Schichtenphasenstruktur mit einer Einheitsdicke von etwa 10 nm wurde beobachtet, worin die Struktur des Copolymers um den dispergierten Montmorillonit in einer Amidsystem-Copolymer-Phase gesteuert wurde und mehrere Phasen auflaminiert waren.

#### Beispiel 9

60 g des in Beispiel 4 erhaltenen Verbundmaterials und 140 g Nylon-6 wurden unter Vermischen mit einem Zweischnellenextruder geschmolzen. Die Vermischungstemperatur war 280°C und die Achsenrotationsgeschwindigkeit war 200 Upm.

Bei Untersuchung des resultierenden Harzverbundmaterials mit einem Elektronenmikroskop wurde ein Amidsystem-Copolymer in Nylon-6 im Submikronbereich dispergiert gefunden. Eine Schichtenphasenstruktur mit einer Einheitsdicke von etwa 10 nm wurde beobachtet, worin die Struktur des Copolymers um den dispergierten Montmorillonit in einer Amidsystem-Copolymer-Phase gesteuert wurde und mehrere Phasen auflaminiert waren.

#### Vergleichsbeispiel 1

Es wurde ein Harzmaterial, das nur aus einem Copolymer bestand, ohne die Zugabe von Teilchen hergestellt. Als Copolymer wurde Tuftec H 1013 (hergestellt von der Firma Asahi Chemical) eingesetzt.

Bei Beobachtung mit einem Transmissionselektronenmikroskop wurde – wie in Fig. 9 gezeigt – gefunden, daß die Phasenstruktur des Harzmaterials dieses Beispiels statistisch war.

#### Vergleichsbeispiel 2

Es wurde ein Harzmaterial, das nur aus einem Copolymer bestand, ohne die Zugabe von Teilchen hergestellt. Als Copolymer wurde Daiamide (hergestellt von der Firma Disel, Hules) eingesetzt.

Die Phasenstruktur des Harzmaterials dieses Beispiels war statistisch.

#### Vergleichsbeispiel 3

Es wurde ein Harzmaterial, das nur aus einem Copolymer bestand, ohne die Zugabe von Teilchen hergestellt. Als Copolymer wurde Estran C95A (hergestellt von der Firma Takeda Verdishurethane Kogyo) eingesetzt.

Die Phasenstruktur des Harzmaterials dieses Beispiels war statistisch.

#### Vergleichsbeispiel 4

Als Teilchen wurden Talk und Glimmer mit einer Oberfläche von 5,0 m<sup>2</sup>/g eingesetzt. Dies sind plättchenförmige Teilchen mit einem Seitenverhältnis von 30 und einer Länge von 5 µm.

Als Copolymer wurde wie in Beispiel 1 Tuftec H1013 eingesetzt.

Ein Harzverbundmaterial wurde in derselben Weise wie in Beispiel 1 hergestellt.

Bei Beobachtung mit einem Transmissionselektronenmikroskop wurde gefunden, daß die Phasenstruktur statistisch war.

Es ist offensichtlich, daß in Lichte der vorstehenden Lehre zahlreiche Modifikationen und Variationen der vorliegenden Erfindung möglich sind. Die beigefügten Patentansprüche sollten so verstanden werden, daß ihr Umfang die Durchführung der Erfindung auf eine andere als die hierin beschriebene Weise umfaßt.

#### Patentansprüche

1. Harzverbundmaterial, das Teilchen mit einer Ober-



- fläche von nicht weniger als 50 m<sup>2</sup>/g und wenigstens zwei oder mehr Polymere oder ein Copolymer, das wenigstens zwei oder mehr Segmente aufweist, umfaßt, wobei die Polymere oder das Copolymer eine Phasenstruktur bilden/bildet, die auf die Oberfläche der Teilchen auflaminiert sind/ist und eine Einheitsdicke von 1 nm bis 1.000 nm aufweist.
2. Harzverbundmaterial nach Anspruch 1, wobei die Teilchen eine nadelförmige, platten- bzw. blattförmige, kugelförmige oder zylindrische Form haben.
3. Harzverbundmaterial nach Anspruch 1, wobei das Copolymer ein Blockcopolymer oder ein Pfropfcopolymer ist, das wenigstens zwei oder mehr Arten von Segmenten umfaßt.
4. Harzverbundmaterial nach Anspruch 2, wobei das Copolymer ein Blockcopolymer oder ein Pfropfcopolymer ist, das wenigstens zwei oder mehr Arten von Segmenten umfaßt.
5. Harzverbundmaterial nach einem der Ansprüche 1 bis 4, wobei die Oberfläche der Teilchen nicht kleiner als 200 m<sup>2</sup>/g ist.
6. Harzverbundmaterial nach einem der Ansprüche 1 bis 5, wobei die wenigstens zwei Polymere oder das Copolymer, das wenigstens zwei Segmente enthält, dazu neigen/neigt, daß homogene Polymere oder Segmente unter Phasentrennung aggregieren.
7. Harzverbundmaterial nach einem der Ansprüche 1 bis 6, wobei die Polymere oder das Copolymer um das Teilchen eine Phasenstruktur mit einer Einheitsdicke von 5 nm bis 1.000 nm bilden/bildet.
8. Harzverbundmaterial nach einem der Ansprüche 1 bis 7, wobei das Teilchen Metall, Keramik, Ton oder eine Kohlenstoffverbindung umfaßt.
9. Harzverbundmaterial nach einem der Ansprüche 1 bis 8, wobei das Teilchen Latex, ein vernetztes Polymer oder einen niedermolekularen organischen Kristall umfaßt.
10. Harzverbundmaterial nach einem der Ansprüche 1 bis 9, wobei die wenigstens zwei oder mehr Polymere gewählt sind aus der Gruppe, die besteht aus Polyamid, Polyurethan, Polyharnstoff, Polycarbonat, Polyacetal, Polyester, Polyarylat, Polyphenylenether, Polyphenylensulfid, Polyethylen, Polypropylen, Polybuten, Polypenten, Ethylen-Propylen-Copolymer, Ethylen-Buten-Copolymer, Polybutadien, Polyisopren, hydriertes Polybutadien, hydriertes Polyisopren, Ethylen-Propylen-Dien-Copolymer, Ethylen-Buten-Dien-Copolymer, Butylkautschuk, Polystyrol, Styrol-Butadien-Copolymer, Styrol-hydriertes Butadien-Copolymer, Polyether, Polysulfon, Polyketon, Polyphthalimid, Polyethernitril, Polybenzimidazol, Polyimid, Polycarbodiimid, fluoriertes Polymer wie polytetrafluoriertes Ethylen und dergleichen, Polyamidimid, Polyetherimid, Flüssigkristallpolymer, Polysilan, Siliconpolymer wie Polysiloxan und dergleichen, und Acrylpolymer wie Polymethylmethacrylat und dergleichen.
11. Harzverbundmaterial nach einem der Ansprüche 1 bis 10, wobei wenigstens zwei Polymere gewählt sind aus einer Kombination von Polyphenylenoxid und Polystyrol, einer Kombination von Polypropylen und Ethylen-Propylen-Kautschuk, einer Kombination von Polypropylen und Polybuten, einer Kombination von Polypropylen und Styrol-Butadien-Kautschuk oder einer Kombination von Polypropylen und hydriertem Styrol-Butadien-Kautschuk.
12. Harzverbundmaterial nach einem der Ansprüche 1 bis 9, wobei das Copolymer mit wenigstens zwei Segmenten ein Copolymer ist, das durch Polymerisation

- von wenigstens zwei Verbindungen erhalten wird, die gewählt sind aus Polyamid, Polyurethan, Polyharnstoff, Polycarbonat, Polyacetal, Polyester, Polyarylat, Polyphenylenether, Polyphenylensulfid, Polyethylen, Polypropylen, Polybuten, Polypenten, Ethylen-Propylen-Copolymer, Ethylen-Buten-Copolymer, Polybutadien, Polyisopren, hydriertes Polybutadien, hydriertes Polyisopren, Ethylen-Propylen-Dien-Copolymer, Ethylen-Buten-Dien-Copolymer, Butylkautschuk, Polystyrol, Styrol-Butadien-Copolymer, Styrol-hydriertes Butadien-Copolymer, Polyether, Polysulfon, Polyketon, Polyphthalimid, Polyethernitril, Polybenzimidazol, Polyimid, Polycarbodiimid, fluoriertes Polymer wie polytetrafluoriertes Ethylen und dergleichen, Polyamidimid, Polyetherimid, Flüssigkristallpolymer, Polysilan, Siliconpolymer wie Polysiloxan und dergleichen, und Acrylpolymer wie Polymethylmethacrylat und dergleichen.
13. Harzverbundmaterial nach einem der Ansprüche 1 bis 12, wobei das Zahlenmittel des Molekulargewichts der wenigstens zwei Polymere oder des Copolymers mit wenigstens zwei Segmenten 5.000 bis 10.000.000 ist.
14. Harzverbundmaterial nach einem der Ansprüche 1 bis 12, wobei der Teilchengehalt 0,1 bis 200 Gew.-Teile ist, bezogen auf 100 Gew.-Teile der Polymere oder des Copolymers.
15. Harzverbundmaterial nach einem der Ansprüche 1 bis 14, wobei die Teilchen in den Polymeren oder in dem Copolymer fein dispergiert sind.
16. Harzverbundmaterial nach einem der Ansprüche 1 bis 15, wobei die Teilchen Schichtenton sind und die Polymere oder das Copolymer zwischen den Ton-schichten interkaliert sind/ist.
17. Harzverbundmaterial nach einem der Ansprüche 1 bis 16, wobei das Harzverbundmaterial ein vibrationsdämpfendes Material, ein gegen Vibration isolierendes Material, ein elektrisch leitendes Material, ein Folienmaterial, ein optisches Material oder ein antimagnetisches Material ist.
18. Harzverbundmaterial nach einem der Ansprüche 1 bis 17, wobei die Phasenstruktur in den Polymeren oder in dem Copolymer in einer Menge von 25 bis 100 Gew.-% enthalten ist.
19. Harzverbundmaterial, das dadurch gekennzeichnet ist, daß das Harzverbundmaterial nach einem der Ansprüche 1 bis 18 zu einem Harz gegeben wird, das keinen Teil enthält, in dem eine Phasenstruktur gebildet ist.
20. Harzverbundmaterial, welches Teilchen, die eine Oberfläche von nicht kleiner als 50 m<sup>2</sup>/g haben, und wenigstens zwei Polymere oder ein Copolymer, das wenigstens zwei Segmente enthält, umfaßt, wobei die Polymere oder das Copolymer einen Teil haben/hat, in dem die Anordnung der Harzmoleküle durch die Teilchen gesteuert wird.

---

Hierzu 9 Seite(n) Zeichnungen

---

- Leerseite -

FIG. 1A

FIG. 1B

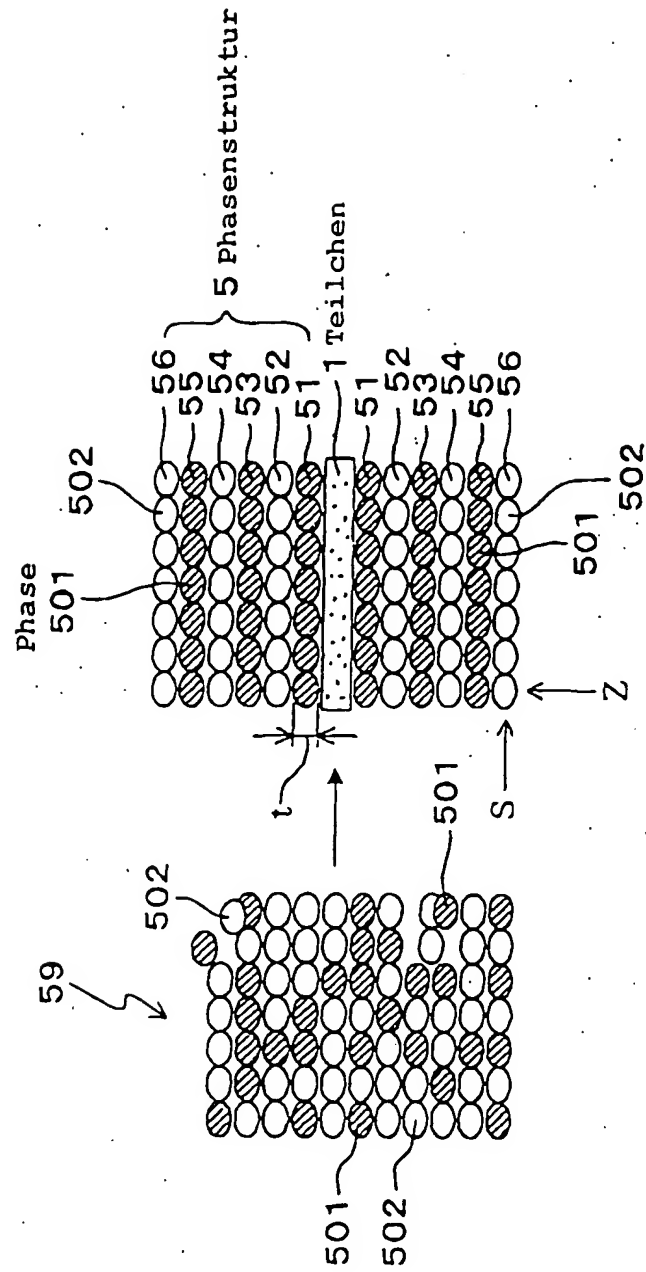


FIG. 2A

FIG. 2B

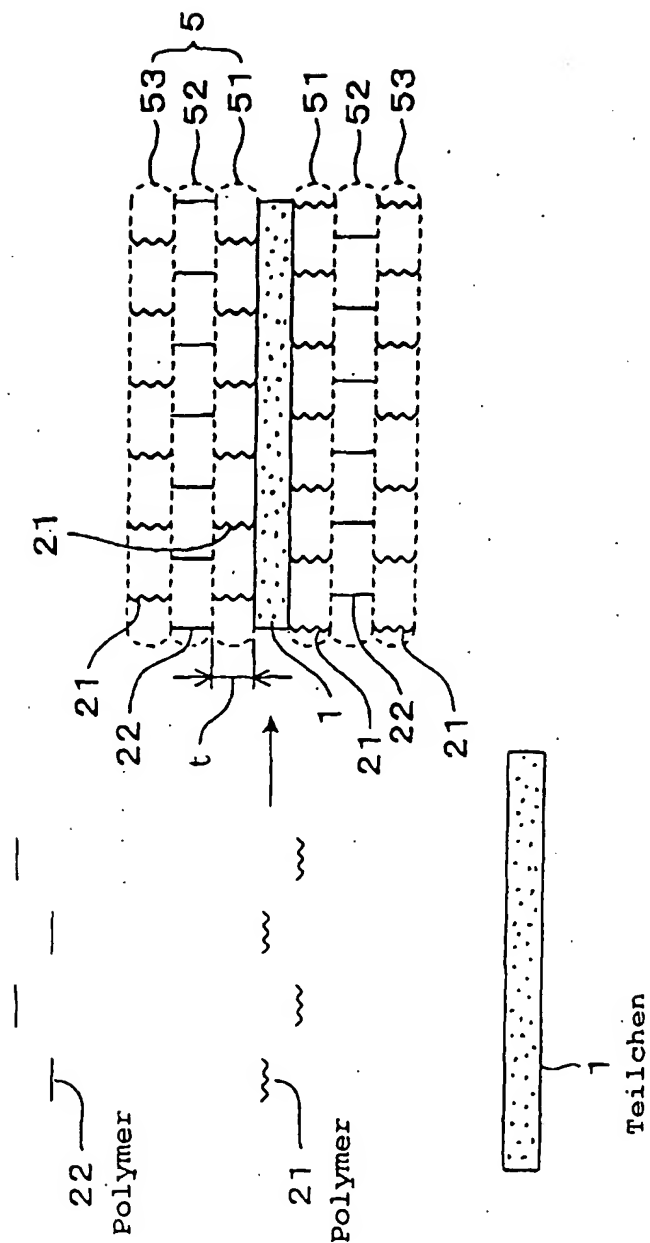


FIG. 3A

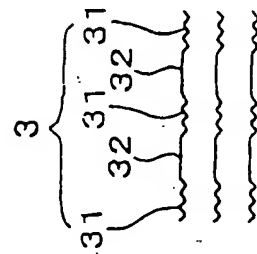
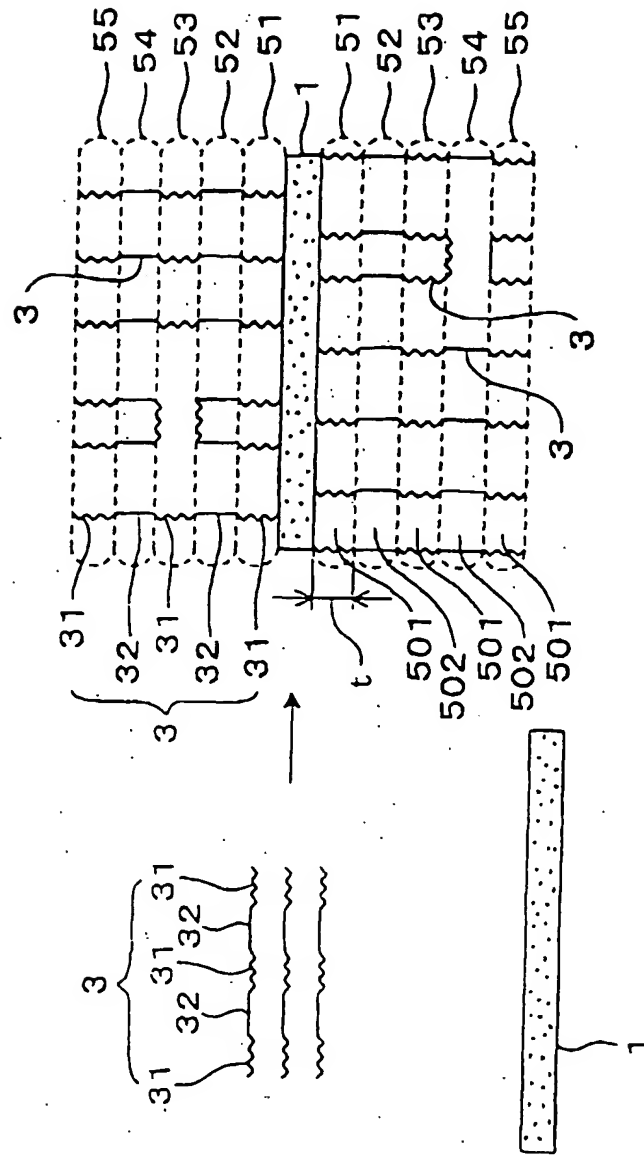
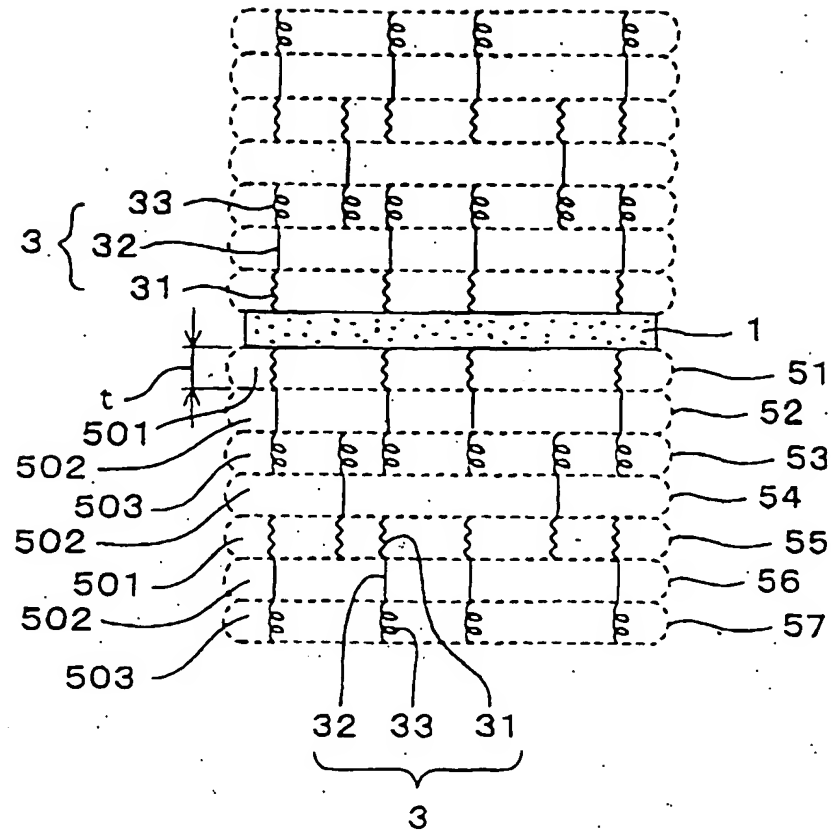
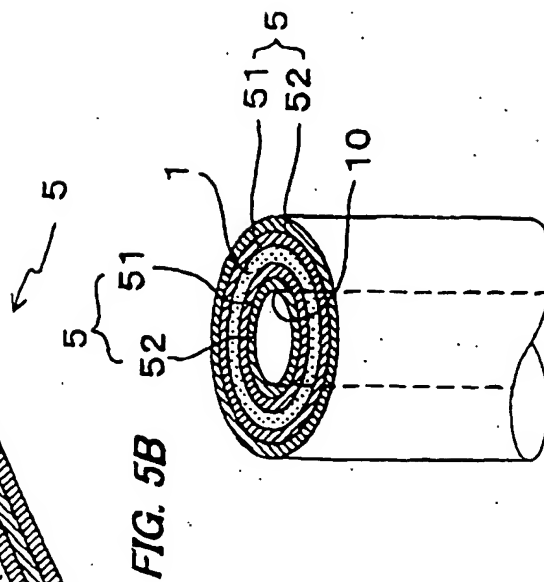
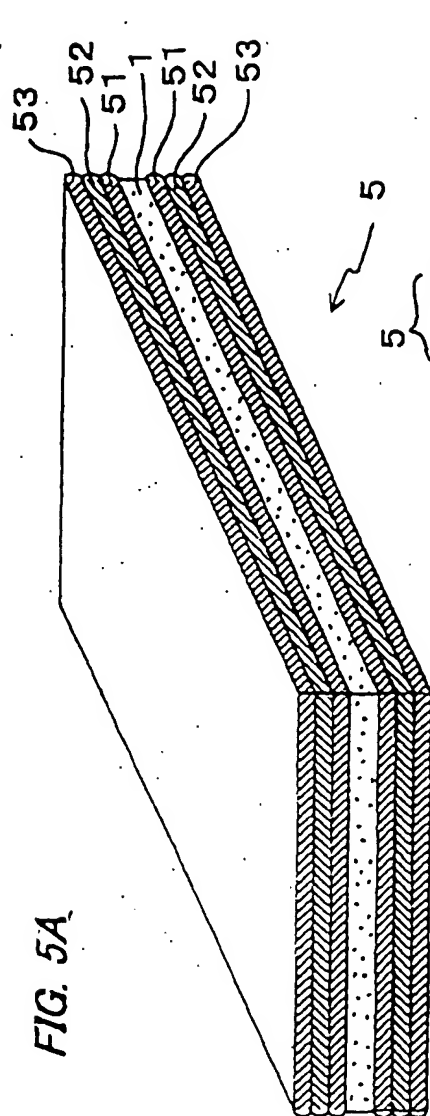


FIG. 3B



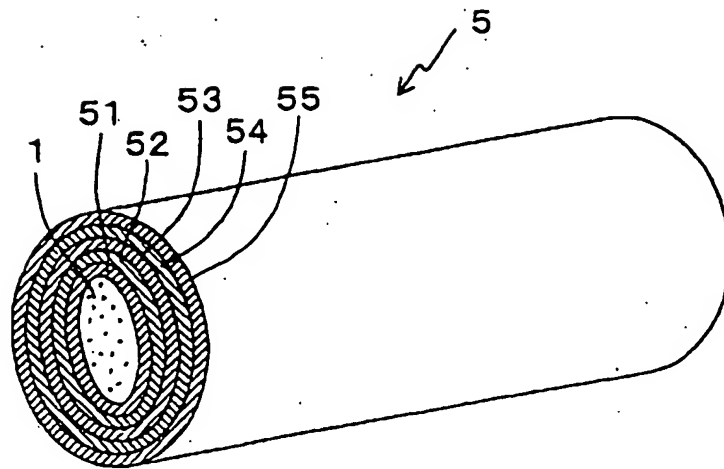
**FIG. 4**



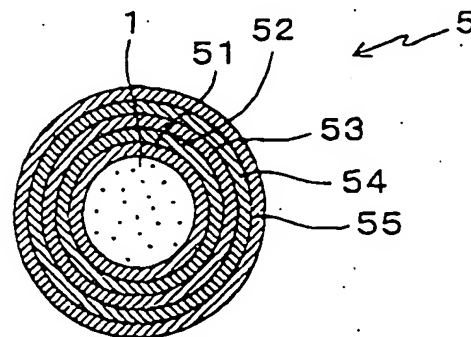




**FIG. 6A**

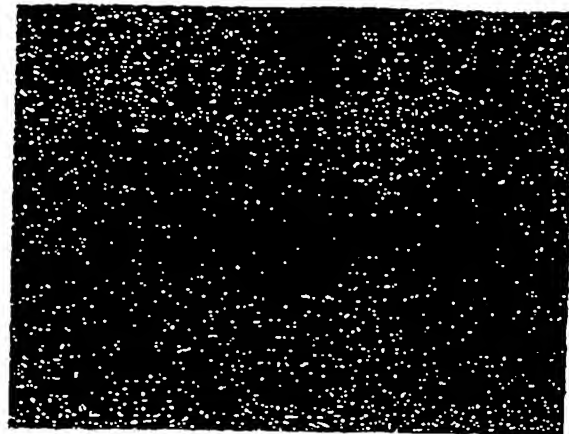


**FIG. 6B**





**FIG. 8**



200nm

**FIG. 9**

